

平成21年 5月12日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19760501
 研究課題名 (和文) 3次元粒子アセンブルによるテラヘルツ波フォトニック結晶デバイスの創製
 研究課題名 (英文) Fabrication of terahertz photonic crystal devices by three-dimensional particle assembly
 研究代表者
 高木 健太 (TAKAGI KENTA)
 東北大学・大学院工学研究科・助教
 研究者番号：00400284

研究成果の概要：本研究では、テラヘルツ (10^{12} Hz) 電磁波の制御デバイスとなるフォトニック結晶の作製を目的として、均一な粒径をもつ球形粒子を任意の3次元周期構造に配列する技術を確立した。この技術を用いて、誘電性高分子粒子を、デバイスとしての理想構造であるダイヤモンド格子に配列したところ、テラヘルツ領域において明確なフォトニックバンドギャップの発現を確認した。これはテラヘルツ導波路や共振器などのデバイス創製の実現性を示すものである。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,000,000	0	2,000,000
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,100,000	330,000	3,430,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・材料加工・処理

キーワード：粉末冶金、フォトニック結晶

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ波 (THz波) と呼ばれる数10～数100 μm の波長の電磁波領域には殆どの分子の固有振動数が存在していることから、癌治療や生体イメージング、爆薬・細菌検知など、非常に多くの分野への展開が期待されている。ところが、THz波の特殊な性質は逆に、既存技術に基づく伝送や変調などの制御デバイスの開発を困難にし、これはTHz波が秘める革新的技術の萌芽を妨げる要因になっている。

一方で、電磁波を操作する新技術としてフォトニック結晶が近年注目されている。フォトニック結晶とは誘電率の周期性をもつ構造体であり、その周期にほぼ等しい波長の電磁波に対して電磁波禁制帯 (フォトニックバンドギャップ: PBG) を形

成する。これは、半導体が電子バンドギャップを発現することに置換えて説明できる。つまり、PBGに対応する電磁波はフォトニック結晶内に存在できずに全反射され、なおかつ、結晶内に周期欠陥が存在すればそこに特定電磁波が局在することとなる。これを利用して、設計された欠陥が導入されたフォトニック結晶は共振器や導波路、フィルターなどの様々な制御デバイスと成りえる。したがって、フォトニック結晶はTHz波制御の問題を一挙に解決する最有力技術と見られている。

THz波フォトニック結晶デバイスの達成には、その波長に対応した数10～数100 μm の格子周期を持つ3次元構造体の作製技術、および意図的な欠陥導入技術が必須であり、これに対し

様々な加工法が試みられている。しかしながら、加工精度・速度・自由度や材料制限の観点からTHz波フォトニック結晶の作製に至った報告は僅かである。加えて、フォトニック結晶においては、半導体と同様に、ダイヤモンド構造のみが容易に完全PBG(全方位の電磁波を完全反射)を発現し、唯一デバイス化に供しえると予測されているが、ダイヤモンド型THz波フォトニック結晶となるとその研究例は皆無である。よって、数10~数100 μm の誘電性周期を持つ3次元構造体、特にダイヤモンド構造を作製することができれば、THz波の制御が初めて現実的なものとなり、ひいてはTHz波の展開に大きな活路を開くことができる。

このような背景の中で、申請者は、独自開発したパルス圧力付加オリフィス噴射法(POEM)が、数10~数100 μm の粒径で、かつ非常に粒径の揃った球形粒子を作製できることに着目した。これら球形粒子を精確に3次元配列できれば、THz波波長に一致する3次元周期構造が構築可能である。このような考えから申請者は現在までに、この球形単分散金属粒子を自己組織化により3次元人工結晶に配列し、この間隙に誘電性樹脂を含浸して粒子を溶解除去することで反転型人工結晶を作製した。そして、この結晶によって理論計算に極めてよく一致するPBGをTHz波領域において発現させることに成功した。但し、自己組織化ではf.c.c.構造しか作製することができず、前述したとおりダイヤモンド構造以外では完全PBGの発現は難しい。

そこで申請者らは、ダイヤモンド構造を含むいかなる3次元構造にも単分散粒子を配列できる新規技術を提案し、それに基づいた高精度粒子配列システムを設計・製作した。

2. 研究の目的

本研究の目的は、球形マイクロ粒子をダイヤモンド構造に配列し、完全フォトニックバンドギャップをもつ3次元テラヘルツ波フォトニック結晶、さらにはテラヘルツ波制御デバイスを創製することにある。

3. 研究の方法

本研究の主たるプロセスとなる高精度粒子配列システムを図1に示す。単分散球形粒

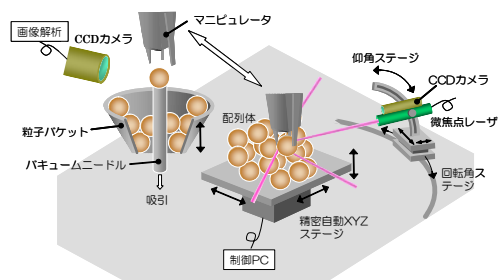


図1 新規開発した高精度粒子配列システムの概念図

子をマニピュレータにより配列座標に搬送し、隣接する複数の既配列粒子との接点のみを微焦点レーザーによって多点同時に局所加熱することで融解・連結し、これを繰り返すことで配列体をアSEMBルする。ゆえに、たとえ空間的に不安定な非最密充填構造であっても配列することが可能である。また、単純に粒子を配列すると粒子径のバラツキにより配列ズレ(格子ひずみ)を起こす。しかし本技術では、粒子形状データを逐次採取し、このデータに基づいた“粒子の重ね合せ”を融解時に行うことにより、粒子を必ず理想座標に配置する。ゆえに本システムを用いれば、高精度ダイヤモンド構造体の作製が期待できる。

ここで、本研究におけるフォトニック結晶は、誘電性粒子の直接配列、ないしは金属粒子を配列し、それを誘電体材料で反転化することとし、以下の研究を実施した。

(1) 粒子接合技術の確立

レーザーによる粒子接合の基礎知見を得るために、様々な材料からなる粒子を準備し、接合条件を調査した。

粒子材質として、Sn-0.75wt%Cu、Bi-30wt%Sn、Au-30wt%Sn、ポリエチレン(PE)/10vol%カーボンの4種類を準備した。これらの材料からPOEMないしはオイルバス法により直径400 μm の単分散粒子を作製した。

準備した粒子を並べ、その接点に様々な条件のレーザーを照射し、その接合状態を分析した。また、有限要素法による熱伝導解析を行い、得られた分析結果を実験結果と比較した。

(2) フォトニック結晶の設計

ダイヤモンド構造が完全PBGを発現するためには、格子材料が特定の誘電率を超えている必要がある。そこで、必要となる格子特性を平面波展開法および時間領域有限差分法(FDTD法)を用いた数値解析により算出した。

(3) 誘電性格子材料の検討

格子材料にはTHz領域における高い誘電率と透過率が求められる。本研究では格子材料をPE複合材料とし、様々なセラミックス粉末をPEに混合した時の誘電特性を調査した。混合法は超音波を用いた熔融混合とし、誘電特性の測定にはテラヘルツ波時間領域分光法(THz-TDS)を用いた。

(4) 3次元配列技術の確立

高精度粒子配列システムによるダイヤモンド構造の配列を試みた。粒子としては前述(1)~(3)の調査により選出されたBi-SnおよびPE複合粒子とした。様々な配列条件(レーザー条件、粒子操作条件など)により配列を試みた。

(5) ダイヤモンド型周期構造体のテラヘルツ波特性の評価

前述の(4)において作製されたダイヤモンド構造体のテラヘルツ波透過特性を THz-TDS によって評価し、完全 PBG の発現の確認を行った。

4. 研究成果

(1) 粒子接合技術の確立

接点にある程度の出力以上のレーザを照射することにより、全ての材質において溶解接合することが可能であった。但し、溶解体積が粒子体積の大半を占めると粒子は球形を保てなくなり、3 次元配列は困難となる。そして、レーザ出力を調整することにより、図 2 に示すように部分溶解による接合が可能であった。図 3 にレーザ出力と溶解量、および接合の可否の関係を示す。いずれの材質においても部分溶解による接合が可能であ

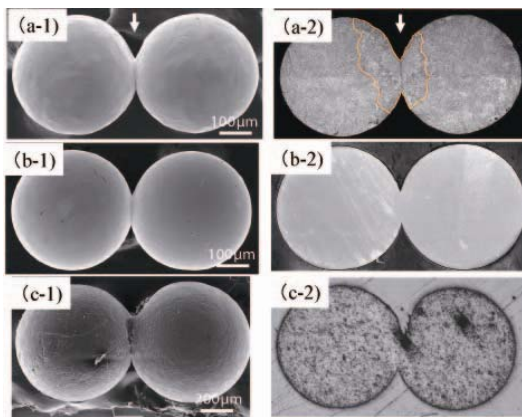


図 2 球形粒子のレーザ溶接後の(#-1)外観と(#-2)断面写真。(a)Bi-Sn 粒子、(b)Au-Sn 粒子、(c)PE/C 粒子。橙色線で囲んだ領域は溶解した部分。

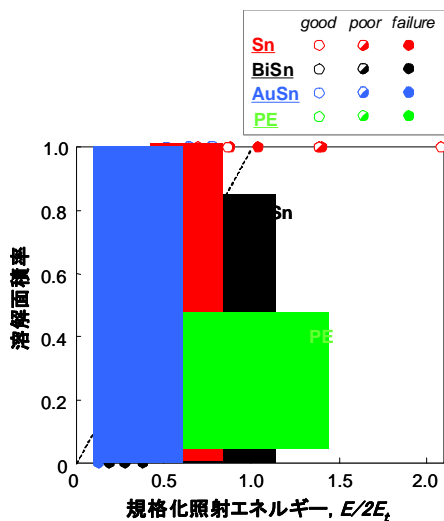


図 3 レーザ粒子接合におけるレーザ照射エネルギーと溶解面積比の関係。したが、Au-Sn と Sn-Cu では部分溶解による

接合が達成できるレーザエネルギー範囲が狭く、配列におけるレーザ条件設定は極めて厳しくなることが予測された。このような部分溶解による接合達成の可否は、表面元素分析と有限要素解析の結果より、表面酸化膜量と熱伝導率に依存していると推測された。実際にこのことは、表面酸化膜がなく熱伝導率が極めて低い PE 粒子が最も有利であり、次に Bi-Sn が続く実験結果からも実証される。

(2) フォトニック結晶の設計

球形格子から成るダイヤモンド構造の格子誘電率を変化させたときの理論 PBG 幅を図 4 に示す。図からもわかるように、例えダイヤモンド構造であっても誘電率が 4 以上でないと完全 PBG は発現しない。また、誘電率が高いほど PBG 幅が広がることが分かった。

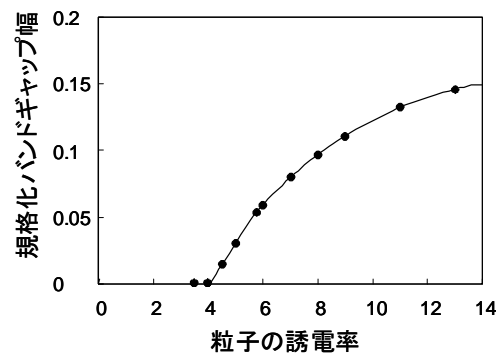


図 4 平面波展開法により得られた球形格子ダイヤモンド構造のダイヤモンド格子誘電率と完全 PBG 幅の関係。

(3) 誘電性格子材料の検討

さまざまな誘電性セラミックスを PE に混合した場合の、混合比と誘電率の関係を図 5 に示す。いずれのセラミックス粉末において

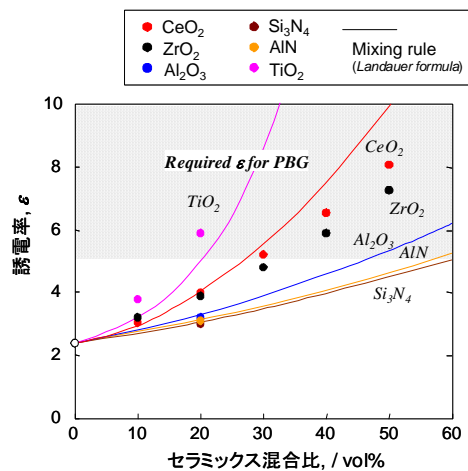


図 5 各種 PE/セラミックス複合体の混合と誘電率の関係(1THz)

も、PE の溶解時の粘性の関係より、60vol%

を混合することは困難であった。60%以下の混合比で4以上の誘電率を達成できたのは、誘電率の高い TiO_2 や CeO_2 、 ZrO_2 との混合体であった。つまり、混合するセラミックスの誘電率は最低でも20以上は必要であるといえる。但し、誘電率が高すぎると透過率が低くなりフォトニック結晶には適用できなくなる。

(4) 3次元配列技術の確立

先述(1)において良好な結果の得られたBi-SnおよびPE-C粒子を用いて、ダイヤモンド構造の作製を試みた。配列は図6(a)のようにエピタキシャル成長のようにlayer-by-layerで行った。また、レーザ入射座標はレーザと既配列粒子との干渉がないように3D-CADで算出し、図6(b)のように決定した。

図7に配列結果を示す。Bi-Sn粒子では4層までしか配列することができなかった。これは、断面写真などの分析などから、接点数が増えると熱逃げが大きくなり、先述(1)の結果における1接点接合のように十分な溶解が得られなかったことに起因していることが分かった。そこで、レーザエネルギーを増

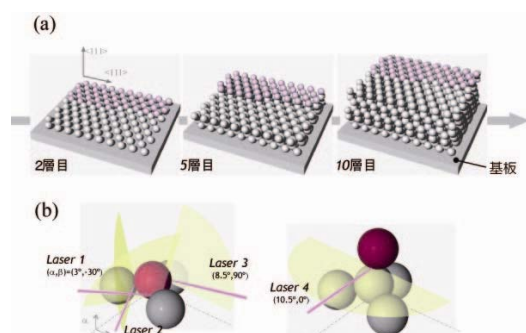


図6 ダイヤモンド構造の配列方法。(a)配列の流れ、(b)レーザ入射座標。

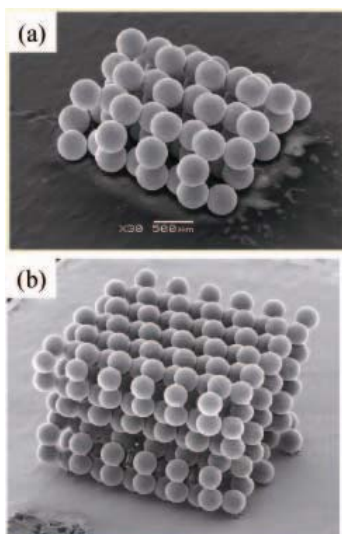


図7 3次元配列の結果。(a)Bi-Sn粒子、(b)PE-C粒子

して配列を行ったが、逆に全溶解を招いてしまい、配列規模の拡大には至らなかった。一方で、PE粒子は熱伝導率がBi-Snの1/10であり、かつ酸化膜も持たないことから非常に良好に接合し、比較的大規模なダイヤモンド構造の構築に成功した。

但し、カーボンが導電体であることから、PE-C粒子はTHz波を透過しない。そこで、カーボン粉末に替え、先述(3)で完全PBG発現に十分な誘電率を持つPE-ZrO₂粒子を用いてダイヤモンド構造の作製を行うこととした。用いた粒子の平均粒径は400 μm で、粒径誤差は $\pm 16\mu\text{m}$ である。図8にPE-ZrO₂粒子から作製したダイヤモンドを示す。この配列体は $10 \times 10 \times 16$ 個の粒子から成っており、単位胞に換算すると $5 \times 5 \times 4$ セルとなる。粒子の欠損や過溶解による変形などは全くなかった。結果として、粒径誤差 $\pm 16\mu\text{m}$ の高質な単分散粒子でないにも関わらず、本粒子配列法は極めて理想に近いダイヤモンド構造の作製

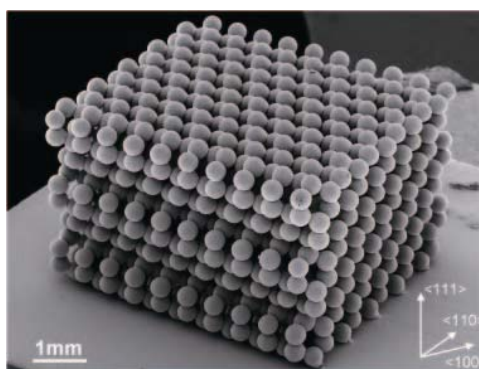


図8 PE-ZrO₂粒子から作製したダイヤモンド構造

に成功した。

(5) ダイヤモンド型周期構造体のテラヘルツ波特性の評価

図8に示したダイヤモンド構造の<111>方向のテラヘルツ波透過スペクトルを図9に示す。

PE-ZrO₂のバルク体を測定した場合には、スペクトルに大きな変化はなく、透過率はおよそ60~90%となる。しかしながら、PE-ZrO₂粒子ダイヤモンド構造では0.2THz付近に透過率の鋭い減衰が見られた。これは、平面波展開法およびFDTDの双方の数値解析の結果と一致することから、PBGであることが分かる。また、実験結果は数値解析と極めて良く一致していることから、ほぼ理想的なダイヤモンド構造であるといえる。このことは同時に、作製されたダイヤモンド構造が完全PBGを持つことを意味する。つまり、このダイヤモンド構造はフォトニック結晶とすることができ、欠陥を導入すれば導波路やフィルターなどの制御デバイスと成ることは間違い

ない。

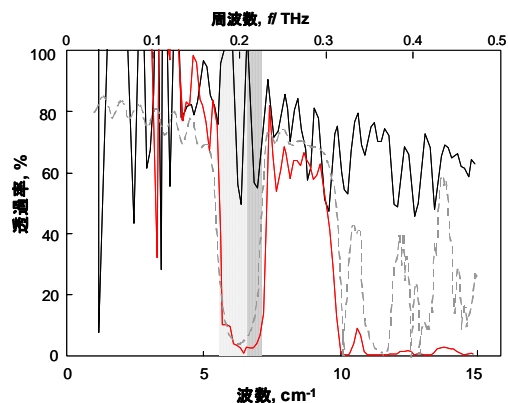


図 9 PE-ZrO₂ 粒子ダイヤモンド構造の<111>方向 THz 波透過スペクトル。赤線は図 8 の試料、黒線はバルク体、破線は FDTD シミュレーションの透過スペクトルを示す。また、薄灰色と濃灰色領域はそれぞれ平面波展開法により算出された<111>ストップギャップと完全 PGB 領域を示す。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① 高木健太、川崎亮、 Fabrication of three-dimensional terahertz photonic crystals with diamond structure by particle manipulation assembly、Applied Physics Letters、94、021110、2009、査読有り

[学会発表] (計 7 件)

- ① 高木健太、表斉礼、川崎亮、3 次元粒子配列法による球形格子ダイヤモンド型 THz 帯フォトニック結晶の作製、平成 20 年度粉体粉末冶金協会秋季大会、2008 年 11 月 5 日、九州大学
- ② 高木健太、表斉礼、川崎亮、Microassembly of Artificial Crystals by Interparticle Laser Welding and Optical Characterization、10th Multiscale and Functionally Graded Materials (M&FGM2008)、2008 年 9 月 23 日、仙台国際センター
- ③ 高木健太、表斉礼、川崎亮、球状格子 3 次元ダイヤモンド型 THz 帯フォトニック結晶の作製、第 69 回応用物理学会学術講演会、2008 年 9 月 4 日、中部大学
- ④ 高木健太、川崎亮、Fabrication of Artificial Crystal Architectures by 3D Particle Assembly and Their THz Wave Property、3rd International Workshop on Nano-Bio and Amorphous Materials、2008 年 8 月 8 日、宮城蔵王

- ⑤ 高木健太、表斉礼、川崎亮、3 次元粒子アセンブルのための球形粒子レーザーマイクロ接合、第 142 回日本金属学会春期大会、2008 年 3 月 26 日、武蔵工業大学
- ⑥ 高木健太、表斉礼、川崎亮、微焦点レーザーによる球形粒子マイクロ接合と 3 次元粒子集積化への応用、平成 19 年度粉体粉末冶金協会 秋季大会、2007 年 11 月 19 日、京都工芸繊維大学
- ⑦ 高木健太、表斉礼、川崎亮、微焦点レーザーによる粒子マイクロ接合と 3 次元人工結晶への応用、第 141 回日本金属学会秋期大会、2007 年 9 月 19 日、岐阜大学

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://msysb.material.tohoku.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

高木 健太 (TAKAGI KENTA)

東北大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：00400284

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし

